

空間反転対称性の破れた重い電子系CeRhSi₃の磁性と超伝導

著者	菅原 徹也
号	54
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	理博第2611号
URL	http://hdl.handle.net/10097/56795

氏名・（本籍）	菅 原 徹 也
学 位 の 種 類	博 士（理 学）
学 位 記 番 号	理博第2611号
学位授与年月日	平成23年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科，専攻	東北大学大学院理学研究科（博士課程）物理学専攻
学位論文題目	空間反転対称性の破れた重い電子系 CeRhSi ₃ の磁性と超伝導
論文審査委員	（主査） 教授 小林 典 男 教授 豊 田 直 樹 教授 青 木 晴 善 准教授 柴 田 尚 和 准教授 木 村 憲 彰

論 文 目 次

第1章 序論

1.1 重い電子系超伝導

1.1.1 重い電子系の温度－圧力相図

1.1.2 磁氣的相互作用を媒介とした超伝導

1.1.3 重い電子系圧力誘起超伝導体における超伝導・磁気相図

1.2 空間反転対称性の破れた超伝導

1.2.1 空間反転対称性とは

1.2.2 空間反転対称性の破れにより期待される物理現象

1.3 空間反転対称性の破れた重い電子系 CeRhSi₃

1.3.1 CeRhSi₃ の既知の物性

1.3.2 本研究の目的

第2章 実験方法

2.1 測定試料

2.2 冷却装置

2.3 加圧方式

2.4 電気抵抗率測定

2.5 交流帯磁率測定

第3章 実験結果と考察

3.1 $j // H // c$ -axis における電気抵抗率

3.1.1 様々な圧力下における電気抵抗率と磁場－温度相図

- 3.1.2 超伝導相線上の折れ曲がり
- 3.1.3 常伝導相の異常
- 3.2 $j // H // a$ -axis における電気抵抗率
 - 3.2.1 様々な圧力下における電気抵抗率と磁場－温度相図
 - 3.2.2 超伝導パラメータの圧力依存性と $H // c$ -axis の結果との対応
 - 3.2.3 CeRhIn5 との比較
- 3.3 $h_0 // H // a$ -axis における交流帯磁率
 - 3.3.1 様々な圧力下における交流帯磁率
 - 3.3.2 超伝導相内における渦糸状態の発達
 - 3.3.3 揺らぎの大きな超伝導状態の実現

第4章 まとめ

- 4.1 CeRhSi₃ の磁性と超伝導
- 4.2 今後の課題

参考文献

謝辞

論文内容要旨

1. 序論

本研究の研究分野の1つである重い電子系では、磁気秩序が消失する圧力点である量子臨界点近傍で超伝導が発現するという、圧力誘起超伝導体の存在が知られている。この超伝導では磁気揺らぎが媒介となってクーパー対が形成されていると考えられているが、その具体的な機構については十分にはわかっていない。またこの超伝導では磁気秩序と超伝導が同時に発現している状態も考えられているが、これらが互いにどのような影響を及ぼし合っているのか、それによって純粋な超伝導とどのような違いが生じてくるのかわかっていない。このように、重い電子系の超伝導は磁性と非常に密接な関わりをもっていると考えられるが、まだ十分な研究が行われているとはいえない。

本研究の対象物質である CeRhSi₃ は 2005 年に N. Kimura らによって発見された重い電子系圧力誘起超伝導体である。この物質は常圧下でネール温度 $T_N = 1.6$ [K] で反強磁性秩序を起こす。一方超伝導は約 0.2 GPa から発現し、超伝導転移温度 T_c は圧力印加とともに増大する。 T_N は $P_1 \simeq 2.4$ [GPa] で T_c と一致するまで観測されており、CeRhSi₃ では非常に広い圧力範囲で磁気秩序の下で発現する超伝導が観測されている。また中性子散乱測定及び dHvA 効果測定から、CeRhSi₃ の伝導を担う f 電子の性質は遍歴的であるという結果が得られている。

CeRhSi₃ は重い電子系物質としての側面のほかに、空間反転対称性の破れた物質としての側面をもっている。これまでの研究ではこの空間反転対称性の破れに注目が集められ、実験では極めて異方的な上部臨界磁場が示唆された。この現象は空間反転対称性の破れに起因する異方的な常磁性対破壊効果によって説明されている。しかしながら上部臨界磁場の圧力依存性など、実験結果には空間反転対称性の破れでは説

明のつかない現象も多い。

本研究では重い電子系における磁性と超伝導の関係を明らかにすべく、 CeRhSi_3 を対象物質として P_1 前後における電気抵抗率と交流帯磁率の詳細測定を行い、磁性及び超伝導の振る舞いを調べた。

2. 測定方法

測定は磁場 c 軸方向、 a 軸方向それぞれにおける交流 4 端子法の電気抵抗率測定、磁場 a 軸方向の交流帯磁率測定を様々な圧力下で行った。測定試料はチョクラルスキー引き上げ法によって自身で作成した単結晶を使用し、冷却装置として 28T 水冷銅マグネット付属希釈冷凍機及び 17T 超伝導マグネット付属希釈冷凍機、 ^4He クライオスタットをそれぞれ使用した。また、圧力発生装置には本研究で改良を行った 2 層式ピストンシリンダー型圧力セルを用い、圧力媒体として 1-プロパノールと 2-プロパノールの 1:1 混合液を、圧力校正にはマンガニン線の電気抵抗を利用した。

3. 実験結果と考察

a) 電気抵抗率測定

磁場 c 軸方向における電気抵抗率測定では、装置の最高磁場である 28T においても超伝導状態を観測し、過去の測定によって示唆されていた、空間反転対称性の破れに起因する大きな上部臨界磁場をより高い磁場まで確認することができた。また詳細な超伝導転移の測定により、 $P > P_1$ の圧力下では超伝導相線上に折れ曲がりが存在することを明らかにした。この現象は従来の重い電子系超伝導体では見られていなかった新しい特徴である。さらにこの超伝導相線の折れ曲がりの発現に伴い、折れ曲がりの磁場 H_{BP} 以上では常伝導状態における電気抵抗率の温度依存性 $\rho(T)$ 上にも温度 T_* において折れ曲がりを観測し、 H_{BP} から発現する磁場誘起相が存在することを明らかにした。このほかにも、 P_1 近傍で超伝導相線のイニシャルスロープが急激に増大することを明らかにした。超伝導相線の折れ曲がりとイニシャルスロープの急激な変化は、超伝導相が反強磁性相及び磁場誘起相という磁性によって影響を受けていることに他ならない。つまり、 CeRhSi_3 には圧力や磁場によって反強磁性相内で発現する超伝導、常磁性相内で発現する超伝導、磁場誘起相内で発現する超伝導という、3 つの異なる超伝導状態が存在する。

一方、磁場 a 軸方向における電気抵抗率測定では $P < P_1$ において非常にブロードな超伝導ドロップを観測し、ドロップの鋭さが P_1 に向かって回復する振る舞いが見られた。常伝導状態においては、 $P > P_1$ の磁場中で $\rho(T)$ に複数の折れ曲がりを観測し、磁場 c 軸方向と異なり複数の磁場誘起相が存在することを明らかにした。磁場 a 軸方向では磁場誘起相による超伝導相線の折れ曲がり観測されていないが、これは磁場 c 軸方向のものとは性質の異なる磁場誘起相が存在するためであると考えられる。本研究で観測されたような、磁気秩序が消失する圧力から発現する磁場誘起相は別の重い電子系超伝導体である CeRhIn_5 でも観測されており、その圧力依存性及び磁場依存性は CeRhSi_3 のものとよく似ている。 CeRhIn_5 では磁気消失圧力を境に f 電子の性質が局在から遍歴に変化すると考えられているように、 CeRhSi_3 と f 電子の性質が異なるが、それにもかかわらずよく似た相図が描かれることは興味深い。

b) 交流帯磁率測定

交流帯磁率測定では、 $P < P_1$ のゼロ磁場及び低磁場において磁束のシールドリングが始まる温度(T_{onset})と急激に発達する温度(T_{main})に明確な差が観測された。これは通常の超伝導体とは明らかに異なる振る舞いである。さらに、 $T_{\text{main}} < T < T_{\text{onset}}$ では非常に小さなシールドリングしか観測されていない一方で、大きな交流損失が観測された。 T_{main} と T_{onset} に差が観測されるという現象の多くは試料内部の不均一性などによる不完全な超伝導で説明されるが、本研究の結果は超伝導の体積分率の観点で矛盾が生じるために不完全

な超伝導では説明できない。これらの結果は、 $T_{\text{main}} < T < T_{\text{onset}}$ ではピン止めが非常に弱く、試料内部に磁束が容易に出入りすることができるためであると理解できる。また T_{onset} は電気抵抗率測定における超伝導ドロップのオンセットと一致しており、弱いピン止め状態とブロードな超伝導ドロップの温度領域がよく対応している。この弱いピン止め状態は磁気秩序が発現している圧力下でのみで観測されているため、弱いピン止め状態が反強磁性秩序と強く結び付いていることを示唆している。

c) 揺らぎの大きな超伝導状態の実現

本研究ではこの弱いピン止め状態の起源として、高温超伝導体や有機超伝導体などで議論されている揺らぎの大きな超伝導の可能性を検討し、実験結果が超伝導揺らぎによって定性的に説明できることを明らかにした。揺らぎの大きな超伝導が実現している場合、通常の揺らぎの小さな超伝導と異なり、超伝導秩序パラメータが有限になる温度と磁束格子を形成する温度に差が生じると考えられている。そしてこれらの間の温度領域では超伝導秩序パラメータが未発達のために超伝導状態であるにもかかわらず有限の電気抵抗率を示し、また磁束格子を組んでいないため磁束流の状態が実現する。これらの現象は電気抵抗率測定で観測されたブロードな超伝導ドロップや弱いピン止め状態に対応していると考えられる。つまり、 T_{onset} が超伝導秩序パラメータの発達し始める温度、 T_{main} が磁束格子を形成する温度であると考えられる。さらに、磁場 c 軸方向において観測された超伝導相線の折れ曲がりについても、折れ曲がりの磁場を境として電気抵抗率の超伝導ドロップのブロードニングが起こっているために、揺らぎの大きな超伝導が関係している可能性が高い。

CeRhSi₃において揺らぎの大きな超伝導が実現するためには、数 μm 程度の大きな磁場侵入長が実現していなければならない。このことは交流帯磁率測定における小さなシールドリング、つまり磁束が試料内部に多く侵入できるという実験結果と矛盾しない。また、この大きな磁場侵入長は言い換えると、他の重い電子系超伝導体と比べて超伝導を担う電子の数が 100 分の 1 程度しかないことを意味している。CeRhSi₃ の伝導を担う f 電子の性質は遍歴的、つまり磁性と超伝導が同じ f 電子によってもたらされていると考えられるため、このような小さな超伝導電子密度は、磁気秩序によってフェルミ面上のほとんどの電子が磁性を担ってしまい、超伝導を担う電子がほとんどなくなってしまうためであると解釈することができる。このことは磁気秩序の下でのみ電気抵抗率及び交流帯磁率の異常が観測されていることと矛盾しない。もしこの事実が正しいとすれば、CeRhSi₃ における磁性と超伝導は互いに競合していると結論付けられる。

4. まとめ

本研究では CeRhSi₃ の磁性及び超伝導に対する電気抵抗率と交流帯磁率の詳細測定を行い、磁場 c 軸方向における磁場－温度相図の超伝導相線上に折れ曲がりを見出し、またこの折れ曲がりに伴う磁場誘起相の存在を明らかにした。さらに、 P_1 を境に超伝導相線のイニシャルスロープが急激に増大することを明らかにした。磁場 a 軸方向では反強磁性秩序と強く結び付いた弱いピン止め状態の存在を示唆する、複雑な電気抵抗率と交流帯磁率の振る舞いを観測した。これらの現象は磁性と超伝導の競合により超伝導電子密度が抑制され、揺らぎの大きな超伝導状態が実現しているためであると理解することができる。

論文審査の結果の要旨

CeRhSi_3 は CePt_3Si とともに、正方晶の c 軸方向に空間反転対称性が破れた結晶構造を持ち重い電子系超伝導体として注目されている物質である。 CeRhSi_3 では極めて異方性の強い上部臨界磁場が観測されており、空間反転対称性の破れに起因すると考えられている。また、この物質は RKKY 相互作用と近藤効果の競合による磁気的量子臨界点の近傍にあって、圧力を印加することで磁気秩序状態と超伝導状態を容易に制御することができる。このような磁性と超伝導の競合のために磁場中の超伝導物性は複雑であるが、これまで系統的な研究は行われていない。本論文は、 CeRhSi_3 の圧力下において広い温度範囲にわたって磁性と超伝導の相関を明らかにするため詳細な研究を行ったものである。

著者は、17 T 超伝導マグネットとグルノーブルの 28 T 水冷マグネットを利用して、20 mK の極低温領域まで、強磁場・高圧下において電気抵抗と帯磁率を測定する装置を開発し研究を行った。その結果、 c 軸方向の磁場においては、磁気秩序を示さない高圧下で 20 T を超える非常に大きな上部臨界磁場を示すが、磁場－温度相図上の超伝導相線に折れ曲がりが見れることを観測した。この折れ曲がりの磁場は圧力の減少とともに減少し、2.4 GPa でゼロ磁場における反強磁性転移の出現とともに消えることを明らかにし、折れ曲がりが見れる磁場によって誘起される磁気的転移によって起こることを指摘した。また、 a 軸方向の磁場に対しては、低い臨界磁場を持ち、2 種類の超伝導転移が定義できることを観測した。これらの磁場中転移に対して、圧力を変えて電気抵抗と帯磁率を詳細に測定することによって転移の性質を考察し、反強磁性転移と結びついた揺らぎの大きな超伝導状態と全体としてコヒーレントな超伝導状態の 2 種類の超伝導状態の存在によって説明できることを明らかにした。

本論文の成果は量子臨界点近傍にある重い電子系超伝導体の超伝導状態に対して磁気的状態が及ぼす影響を始めて系統的に明らかにしたものであり高く評価できる。これらの研究成果は、著者が自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有することを示している。したがって、菅原徹也提出の博士論文は博士（理学）の学位論文として合格と認める。